

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-219787

(43)Date of publication of application : 10.08.1999

(51)Int.Cl. H05B 33/22  
C09K 11/06  
C09K 11/06  
C09K 11/06  
C09K 11/06  
C09K 11/06  
H05B 33/14

(21)Application number : 10-022285

(71)Applicant : MITSUI CHEM INC

(22)Date of filing : 03.02.1998

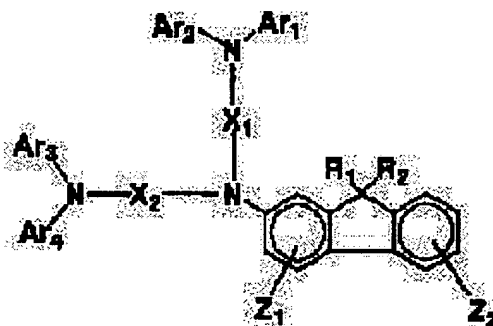
(72)Inventor : NAKATSUKA MASAKATSU  
KITAMOTO NORIKO

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an electroluminescence element improved with stability and durability by inserting at least one layer containing at least one kind of a compound expressed by the specific formula between a pair of electrodes.

**SOLUTION:** In the formula, Ar1-Ar4 are the substituted or unsubstituted aryl group, and Ar1, Ar2 and Ar3, may form nitrogen-containing heterocyclic rings together with coupled nitrogen atoms. R1 and R2 indicate hydrogen atom, the straight chain, branched or ring-like alkyl group, the substituted or unsubstituted aryl group, or the similar aralkyl group, Z1 and Z2 indicate hydrogen atom, halogen atom, the straight chain, branched or ring-like alkyl group, the similar alkoxy group or the aryl group, and X1 and X2 indicate-(A1-X1)m-A2-. A1 and A2 indicate the substituted or unsubstituted phenylene group or the similar naphthylene group, X11 indicates single bond, oxygen atom or sulfur atom, and (m) indicates 0 or 1.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

07.07.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-219787

(43)公開日 平成11年(1999) 8月10日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 5 B 33/22

H 0 5 B 33/22

D

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

6 2 0

6 2 0

6 3 5

6 3 5

6 4 5

6 4 5

6 5 5

6 5 5

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 49 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号

特願平10-22285

(22)出願日

平成10年(1998) 2月3日

(71)出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72)発明者 中塚 正勝

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井  
化学株式会社内

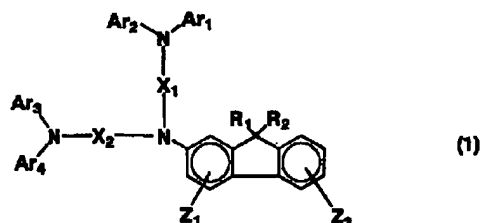
(72)発明者 北本 典子

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井  
化学株式会社内

(54)【発明の名称】 有機電界発光素子

(57)【要約】

【解決手段】 一对の電極間に、一般式(1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。



〔式中、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>4</sub> は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、Ar<sub>1</sub> とAr<sub>2</sub> およびAr<sub>3</sub> とAr<sub>4</sub> は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、R<sub>1</sub> およびR<sub>2</sub> は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいはアラルキル基を表し、Z<sub>1</sub> およびZ<sub>2</sub> は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、アルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、X<sub>1</sub> およびX<sub>2</sub> は- (A<sub>1</sub> - X

11) )。 -A<sub>2</sub> -を表す(但し、A<sub>1</sub> およびA<sub>2</sub> は置換または未置換のフェニレン基、あるいはナフチレン基を表し、X<sub>11</sub>は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、mは0または1を表す)〕

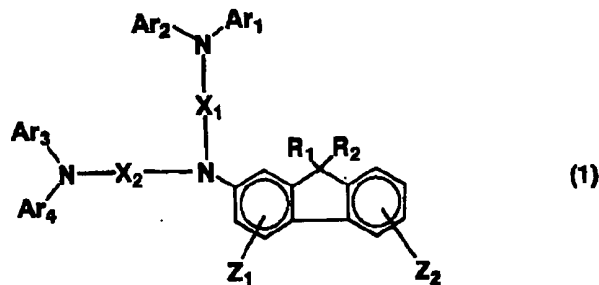
【効果】 発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一对の電極間に、一般式(1)(化1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なく

とも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【化1】



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_3$  と  $Ar_4$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、 $R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1$  および  $X_2$  は  $-(A_1 - X_{11})_m - A_2 -$  を表す(但し、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基を表し、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $m$  は0または1を表す)〕

【請求項2】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、発光層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 一对の電極間に、さらに、発光層を有する請求項1または2記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項1～4のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライトなどのパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子: 有機EL素子)が開発された〔Appl. Phys. Lett., 51、913 (1987)〕。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物

を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔(ホール)を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数V～数十V程度の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色(例えば、赤色、青色、緑色)の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、有機電界発光素子は、安定性、耐久性に乏しいなどの難点がある。

【0003】 正孔注入輸送材料として、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを用いることが提案されている〔Jpn. J. Appl. Phys., 27、L269 (1988)〕。また、正孔注入輸送材料として、例えば、9, 9-ジアルキル-2, 7-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)フルオレン誘導体〔例えば、9, 9-ジメチル-2, 7-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)フルオレン〕を用いることが提案されている(特開平5-25473号公報)。しかしながら、これらの有機電界発光素子も、安定性、耐久性に乏しいなどの難点がある。現在では、一層改良された有機電界発光素子が望まれている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の課題は、安定性、耐久性の改良された有機電界発光素子を提供することである。

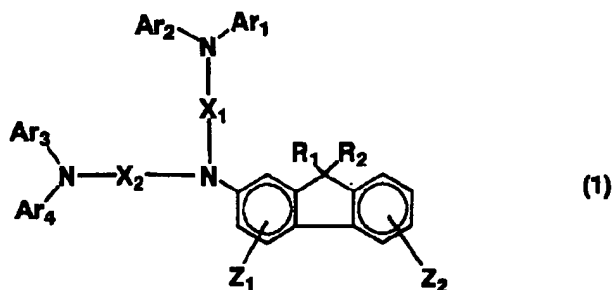
【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明者等は、有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、

①一对の電極間に、一般式(1)(化2)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

【0006】

【化2】



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_3$  と  $Ar_4$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、 $R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1$  および  $X_2$  は  $-(A_1 - X_{11})$ 、 $-A_2 -$  を表す（但し、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基を表し、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $m$  は 0 または 1 を表す）〕

②一般式（１）で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である①記載の有機電界発光素子、

③一般式（１）で表される化合物を含有する層が、発光層である①記載の有機電界発光素子、

④一对の電極間に、さらに、発光層を有する前記①または②記載の有機電界発光素子、

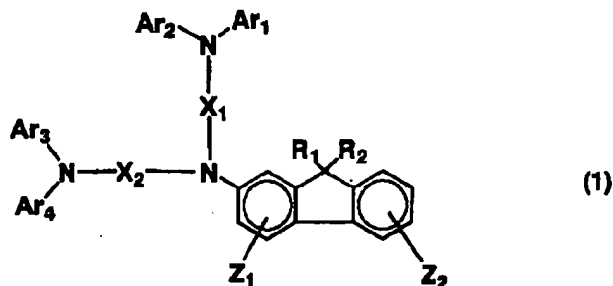
⑤一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記①～④のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

【０００７】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、一般式（１）（化３）で表される化合物を少なくとも１種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。

【０００８】

【化３】



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_3$  と  $Ar_4$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、 $R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1$  および  $X_2$  は  $-(A_1 - X_{11})$ 、 $-A_2 -$  を表す（但し、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基を表し、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $m$  は 0 または 1 を表す）〕

【０００９】一般式（１）において、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表す。尚、アリール基

とは、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントリル基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。

【００１０】 $Ar_1 \sim Ar_4$  は、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数 6～20 の炭素環式芳香族基または総炭素数 3～20 の複素環式芳香族基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 1～14 のアルキル基、炭素数 1～14 のアルコキシ基、あるいは炭素数 6～10 のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数 6～20 の炭素環式芳香族基であり、さらに好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 1～4 のアルキル基、炭素数 1～4 のアルコキシ基、あるいは炭素数 6～10 のアリール基で単置換あるいは多置換されていても

よい総炭素数6~16の炭素環式芳香族基である。

【0011】 $Ar_1 \sim Ar_4$  の具体例としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-アントリル基、9-アントリル基、2-フルオレニル基、4-キノリル基、4-ピリジル基、3-ピリジル基、2-ピリジル基、3-フリル基、2-フリル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾリル基、2-ベンゾチアゾリル基、2-ベンゾイミダゾリル基、4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、2-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-イソブチルフェニル基、4-sec-ブチルフェニル基、2-sec-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、3-tert-ブチルフェニル基、2-tert-ブチルフェニル基、4-n-ペンチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、2-ネオペンチルフェニル基、4-tert-ペンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基、4-(2'-エチルブチル)フェニル基、4-n-ヘプチルフェニル基、4-n-オクチルフェニル基、4-(2'-エチルヘキシル)フェニル基、4-tert-オクチルフェニル基、4-n-デシルフェニル基、4-n-ドデシルフェニル基、4-n-テトラデシルフェニル基、4-シクロペンチルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-(4'-メチルシクロヘキシル)フェニル基、4-(4'-tert-ブチルシクロヘキシル)フェニル基、3-シクロヘキシルフェニル基、2-シクロヘキシルフェニル基、4-エチル-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナフチル基、2, 4-ジメチルフェニル基、2, 5-ジメチルフェニル基、3, 4-ジメチルフェニル基、3, 5-ジメチルフェニル基、2, 6-ジメチルフェニル基、2, 4-ジエチルフェニル基、2, 3, 5-トリメチルフェニル基、2, 3, 6-トリメチルフェニル基、3, 4, 5-トリメチルフェニル基、2, 6-ジエチルフェニル基、2, 5-ジイソプロピルフェニル基、2, 6-ジイソブチルフェニル基、2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル基、2, 5-ジ-tert-ブチルフェニル基、4, 6-ジ-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、5-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、4-tert-ブチル-2, 6-ジメチルフェニル基、9-メチル-2-フルオレニル基、9-エチル-2-フルオレニル基、9-n-ヘキシル-2-フルオレニル基、9, 9-ジメチル-2-フルオレニル基、9, 9-ジエチル-2-フルオレニル基、9, 9-ジ-n-プロピル-2-フルオレニル基、

【0012】4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、

4-n-プロポキシフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基、4-イソブトキシフェニル基、2-sec-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、4-イソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネオペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘキシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチル)オキシフェニル基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ-1-ナフチル基、4-n-ブトキシ-1-ナフチル基、5-エトキシ-1-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、6-エトキシ-2-ナフチル基、6-n-ブトキシ-2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチル基、7-n-ブトキシ-2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-メチル-5-メトキシフェニル基、3-メチル-4-メトキシフェニル基、3-メチル-5-メトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、3-メトキシ-4-メチルフェニル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、2, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジエトキシフェニル基、3, 5-ジ-n-ブトキシフェニル基、2-メトキシ-4-エトキシフェニル基、2-メトキシ-6-エトキシフェニル基、3, 4, 5-トリメトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキシフェニル)フェニル基、2-(2'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-クロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、9-フェニル-2-フルオレニル基、

【0013】4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、4-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、2-クロロフェニル基、4-ブロモフェニル基、2-ブロモフェニル基、4-クロロ-1-ナフチル基、4-クロロ-2-ナフチル基、6-ブロモ-2-ナフチル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、

フェニル基、2, 3-ジクロロフェニル基、2, 4-ジクロロフェニル基、2, 5-ジクロロフェニル基、3, 4-ジクロロフェニル基、3, 5-ジクロロフェニル基、2, 5-ジブromoフェニル基、2, 4, 6-トリクロロフェニル基、2, 4-ジクロロ-1-ナフチル基、1, 6-ジクロロ-2-ナフチル基、2-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-フルオロ-5-メチルフェニル基、3-フルオロ-2-メチルフェニル基、3-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-メチル-4-フルオロフェニル基、2-メチル-5-フルオロフェニル基、3-メチル-4-フルオロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-5-メチルフェニル基、2-クロロ-6-メチルフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、3-クロロ-4-メチルフェニル基、3-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4, 6-ジメチルフェニル基、2-メトキシ-4-フルオロフェニル基、2-フルオロ-4-メトキシフェニル基、2-フルオロ-4-エトキシフェニル基、2-フルオロ-6-メトキシフェニル基、3-フルオロ-4-エトキシフェニル基、3-クロロ-4-メトキシフェニル基、2-メトキシ-5-クロロフェニル基、3-メトキシ-6-クロロフェニル基、5-クロロ-2, 4-ジメトキシフェニル基などを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0014】一般式(1)で表される化合物において、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_3$  と  $Ar_4$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよく、好ましくは、 $-NAr_1Ar_2$  および  $-NAr_3Ar_4$  は、置換または未置換の-N-カルバゾイル基、置換または未置換の-N-フェノキサジイル基、あるいは置換または未置換の-N-フェノチアジイル基を形成していてもよく、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい-N-カルバゾイル基、-N-フェノキサジイル基、あるいは-N-フェノチアジイル基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1~4のアルキル基、炭素数1~4のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換あるいは多置換されていてもよい-N-カルバゾイル基、-N-フェノキサジイル基、あるいは-N-フェノチアジイル基であり、さらに好ましくは、未置換の-N-カルバゾイル基、未置換の-N-フェノキサジイル基、あるいは未置換の-N-フェノチアジイル基である。

【0015】具体例としては、例えば、-N-カルバゾイル基、2-メチル-N-カルバゾイル基、3-メチル-N-カルバゾイル基、4-メチル-N-カルバゾイル基、3-n-ブチル-N-カルバゾイル基、3-n-ヘ-

キシル-N-カルバゾイル基、3-n-オクチル-N-カルバゾイル基、3-n-デシル-N-カルバゾイル基、3, 6-ジメチル-N-カルバゾイル基、2-メトキシ-N-カルバゾイル基、3-メトキシ-N-カルバゾイル基、3-エトキシ-N-カルバゾイル基、3-イソプロポキシ-N-カルバゾイル基、3-n-ブトキシ-N-カルバゾイル基、3-n-オクチルオキシ-N-カルバゾイル基、3-n-デシルオキシ-N-カルバゾイル基、3-フェニル-N-カルバゾイル基、3-(4'-メチルフェニル)-N-カルバゾイル基、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-N-カルバゾイル基、3-クロロ-N-カルバゾイル基、-N-フェノキサジイル基、-N-フェノチアジイル基、2-メチル-N-フェノチアジイル基などを挙げることができる。

【0016】一般式(1)で表される化合物において、 $R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、好ましくは、水素原子、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数4~16の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数5~16の置換または未置換のアラルキル基であり、より好ましくは、水素原子、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~12の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数7~12の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、 $R_1$  および  $R_2$  は炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~10の炭素環式芳香族基、あるいは炭素数7~10の炭素環式アラルキル基である。

【0017】尚、 $R_1$  および  $R_2$  の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、 $Ar_1 \sim Ar_4$  の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。 $R_1$  および  $R_2$  の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、シクロペンチル基、n-ヘキシル基、2-エチルブチル基、3, 3-ジメチルブチル基、シクロヘキシル基、n-ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n-オクチル基、tert-オクチル基、2-エチルヘキシル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ドデシル基、n-テトラデシル基、n-ヘキサデシル基などを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0018】また、 $R_1$  および  $R_2$  の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基、 $\alpha$ -メチルベンジル基、 $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル基、1-ナフチルメチル基、2-ナフチルメチル基、フルフリル基、2-メチルベンジル基、3

ーメチルベンジル基、4-メチルベンジル基、4-エチルベンジル基、4-イソプロピルベンジル基、4-tert-ブチルベンジル基、4-n-ヘキシルベンジル基、4-ノニルベンジル基、3, 4-ジメチルベンジル基、3-メトキシベンジル基、4-メトキシベンジル基、4-エトキシベンジル基、4-n-ブトキシベンジル基、4-n-ヘキシルオキシベンジル基、4-ノニルオキシベンジル基、4-フルオロベンジル基、3-フルオロベンジル基、2-クロロベンジル基、4-クロロベンジル基などのアラルキル基などを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0019】 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数4~20の置換または未置換のアリール基であり、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数6~12の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子である。

【0020】尚、 $Z_1$  および  $Z_2$  の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、 $R_1$  および  $R_2$  の具体例として挙げた直鎖、分岐または環状のアルキル基を例示することができる。また、 $Z_1$  および  $Z_2$  の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、 $Ar_1 \sim Ar_4$  の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。 $Z_1$  および  $Z_2$  のハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基の具体例としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子、例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、2-エチルブトキシ基、3, 3-ジメチルブトキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基、シクロヘキシルメチルオキシ基、n-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、n-ノニルオキシ基、n-デシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基、n-テトラデシルオキシ基、n-ヘキサデシルオキシ基などのアルコキシ基を挙げることができる。

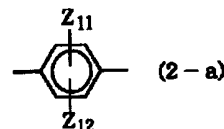
【0021】一般式(1)で表される化合物において、 $X_1$  および  $X_2$  は  $-(A_1 - X_{11})_m - A_2 -$  を表す。(但し、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基を表し、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、m は0または1を表す)

$A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基を表し、好ましくは、置換または未置換の1, 3-フェニレン基、置換または未置換の1, 4-フェニレン基、置換または未置換の1, 4-ナフチレン基、置換または未置換の1, 5-ナフチレン基、置換または未置換の2, 6-ナフチレン基、あるいは置換または未置換の2, 7-ナフチレン基であり、より好ましくは、置換または未置換の1, 4-フェニレン基、置換または未置換の1, 4-ナフチレン基、置換または未置換の1, 5-ナフチレン基、あるいは置換または未置換の2, 6-ナフチレン基である。 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表す。m は0または1を表す。m が1を表す時、より好ましくは、 $A_1$  は置換または未置換の1, 4-フェニレン基である。

【0022】一般式(1)で表される化合物において、 $X_1$  および  $X_2$  としては、より好ましくは、一般式(2-a)~一般式(2-g)(化4~化10)で表されるアリール基である。

【0023】

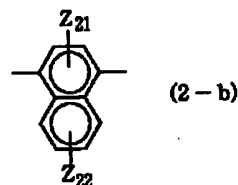
【化4】



(式中、 $Z_{11}$  および  $Z_{12}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0024】

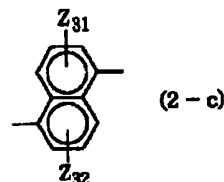
【化5】



(式中、 $Z_{21}$  および  $Z_{22}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0025】

【化6】



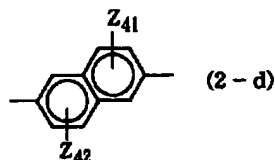
(式中、 $Z_{31}$  および  $Z_{32}$  は水素原子、ハロゲン原子、直



鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0026】

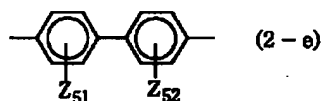
【化7】



(式中、Z<sub>41</sub>およびZ<sub>42</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0027】

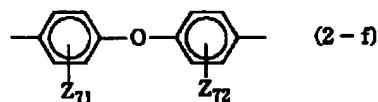
【化8】



(式中、Z<sub>51</sub>およびZ<sub>52</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0028】

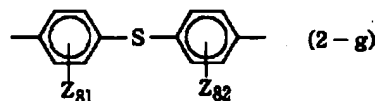
【化9】



(式中、Z<sub>61</sub>およびZ<sub>62</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0029】

【化10】



(式中、Z<sub>71</sub>およびZ<sub>72</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0030】一般式(2-a)～一般式(2-g)において、Z<sub>11</sub>、Z<sub>12</sub>、Z<sub>21</sub>、Z<sub>22</sub>、Z<sub>31</sub>、Z<sub>32</sub>、Z<sub>41</sub>、Z<sub>42</sub>、Z<sub>51</sub>、Z<sub>52</sub>、Z<sub>61</sub>、Z<sub>62</sub>、Z<sub>71</sub>およびZ<sub>72</sub>(以下、Z<sub>11</sub>～Z<sub>72</sub>と略記する)は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1～16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数4～20の置換または未置換のアリール基であり、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1～8の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数6～12の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子である。

【0031】Z<sub>11</sub>～Z<sub>72</sub>の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、R<sub>1</sub> およびR<sub>2</sub> の具体例として挙げた直鎖、分岐または環状のアルキル基を例示することができる。また、Z<sub>11</sub>～Z<sub>72</sub>の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>4</sub> の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。

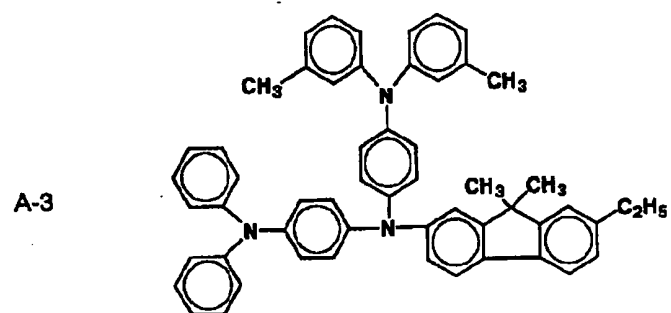
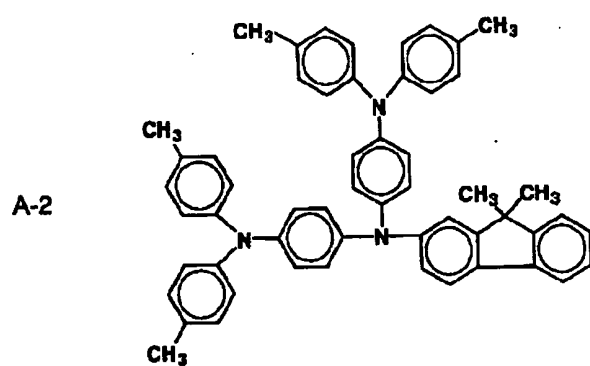
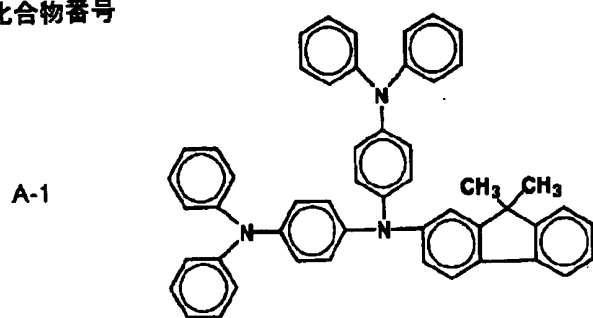
【0032】Z<sub>11</sub>～Z<sub>72</sub>のハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基の具体例としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子、例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、2-エチルブトキシ基、3,3-ジメチルブトキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基、シクロヘキシルメチルオキシ基、n-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、n-ノニルオキシ基、n-デシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基、n-テトラデシルオキシ基、n-ヘキサデシルオキシ基などのアルコキシ基を挙げることができる。

【0033】本発明に係る一般式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物(化11～化41)を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、式中、Phはフェニル基を、Bzはベンジル基を表す。

【0034】

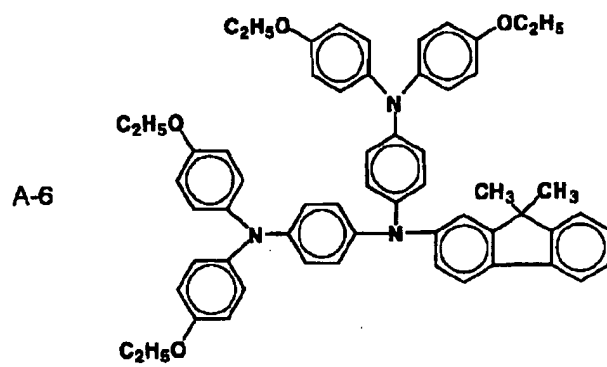
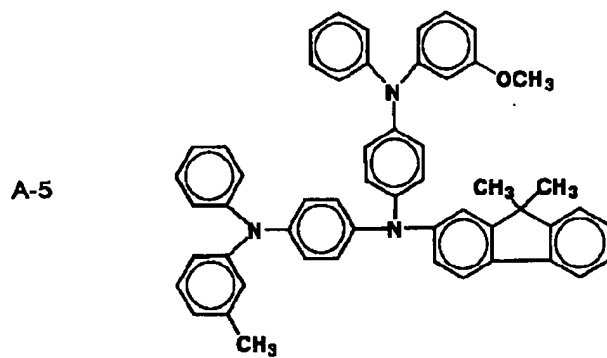
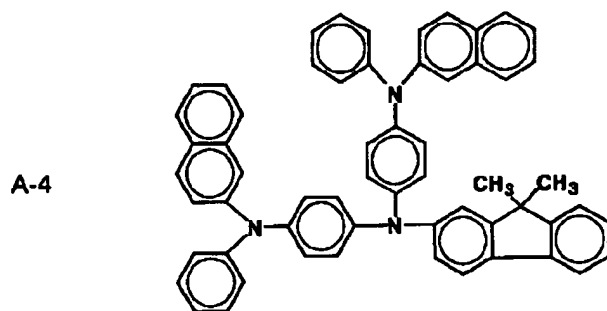
【化11】

例示化合物番号



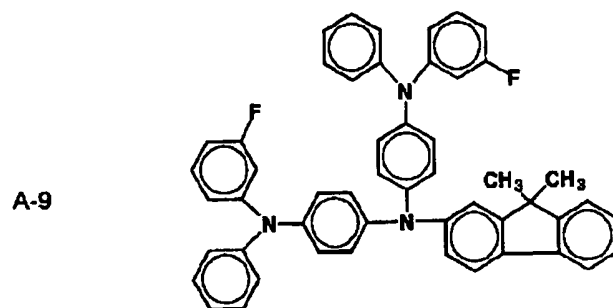
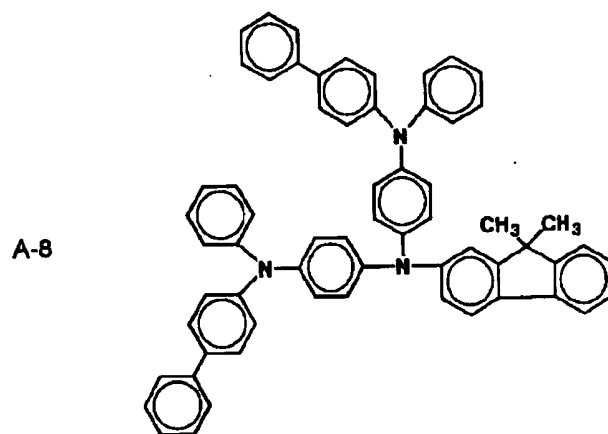
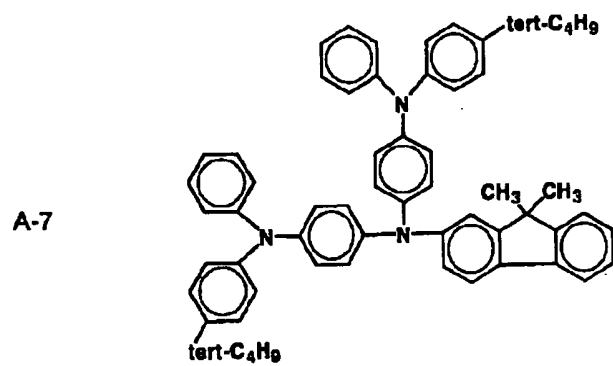
【0035】

【化12】



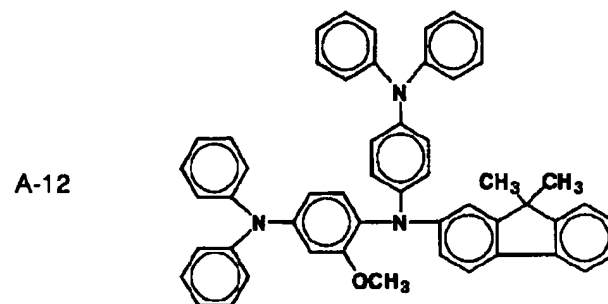
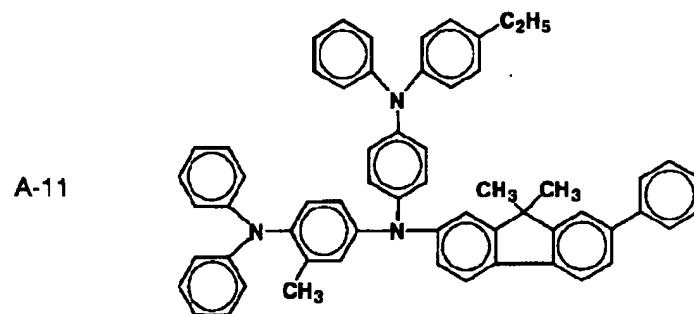
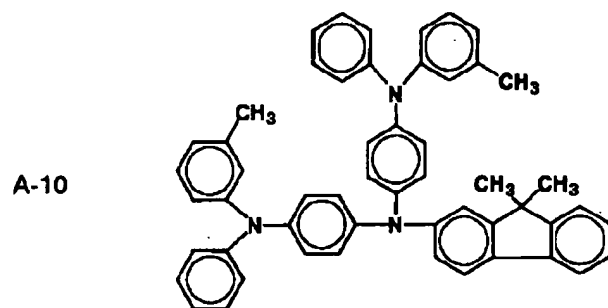
【0036】

【化13】



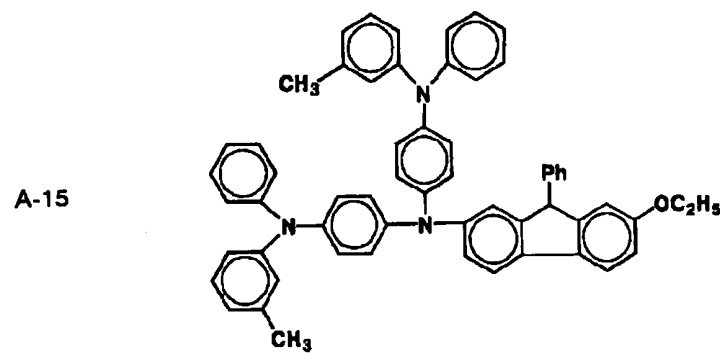
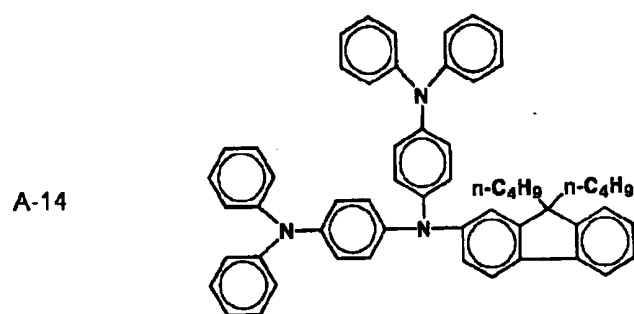
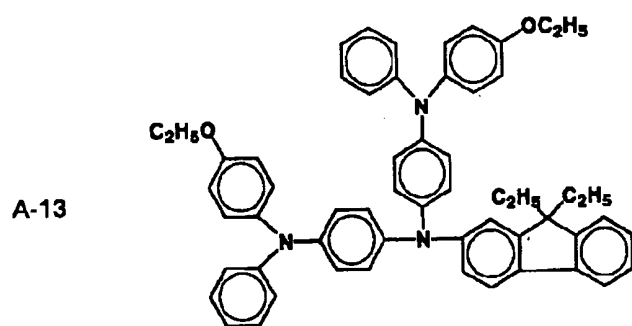
【0037】

【化14】

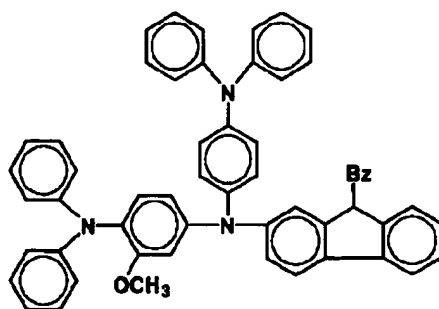


【0038】

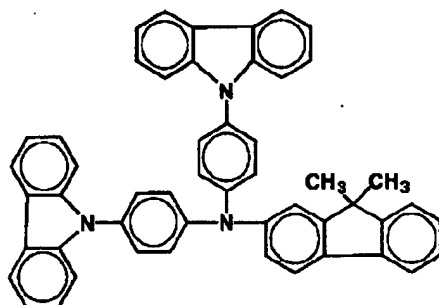
【化15】



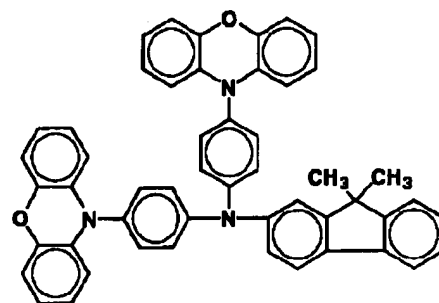
A-16



A-17



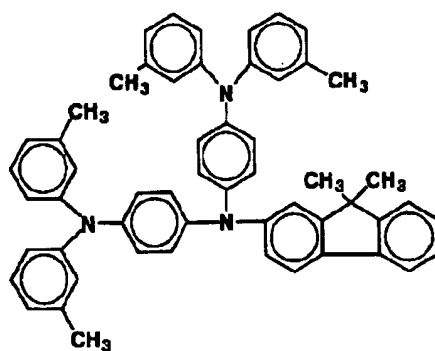
A-18



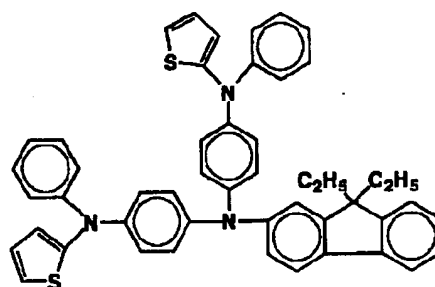
【0040】

【化17】

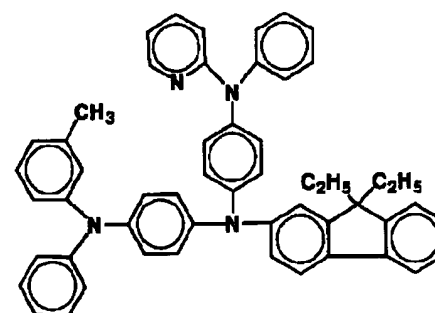
A-19



A-20



A-21



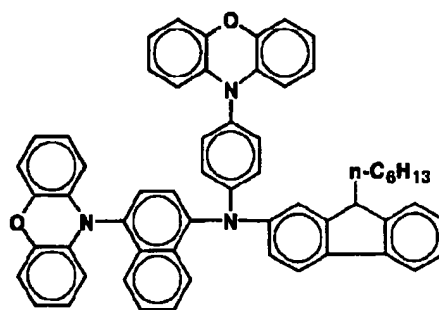
【0041】

【化18】

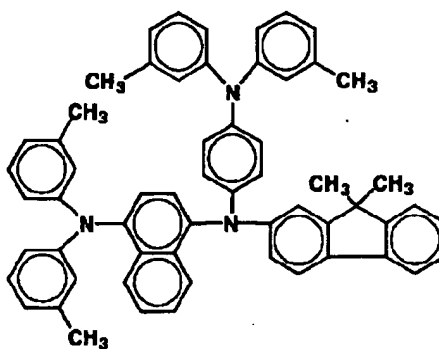


## 例示化合物番号

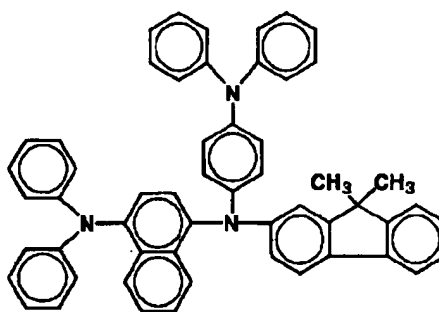
B-1



B-2



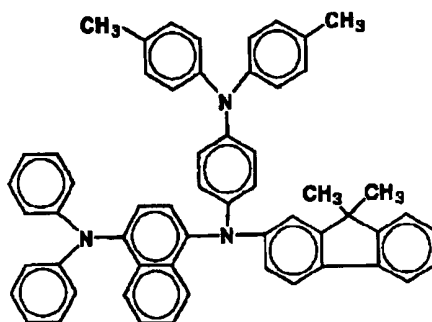
B-3



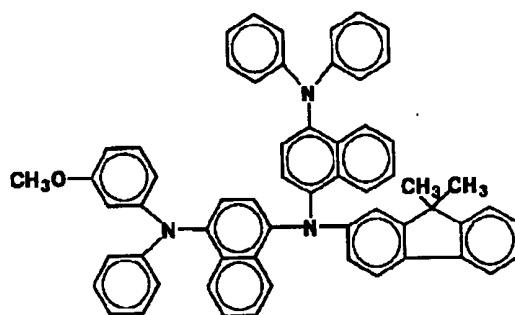
【0042】

【化19】

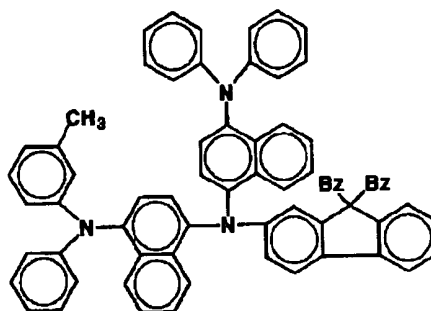
B-4



B-5



B-6

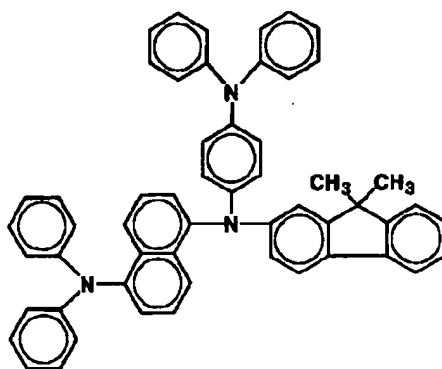


【0043】

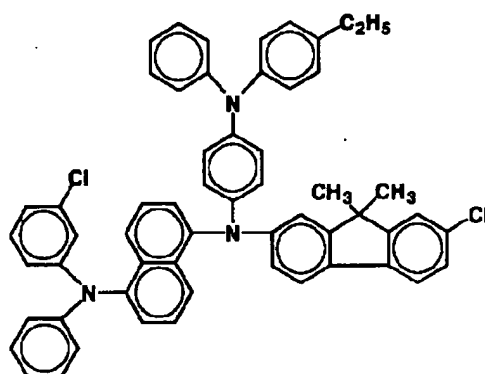
【化20】

## 例示化合物番号

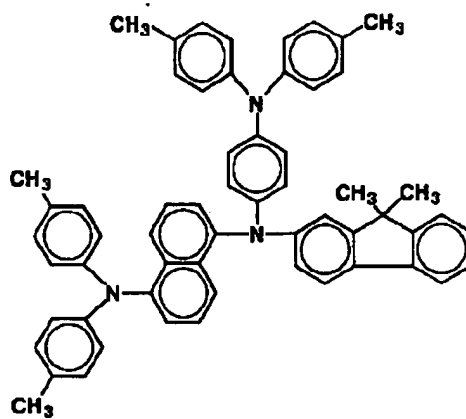
C-1



C-2



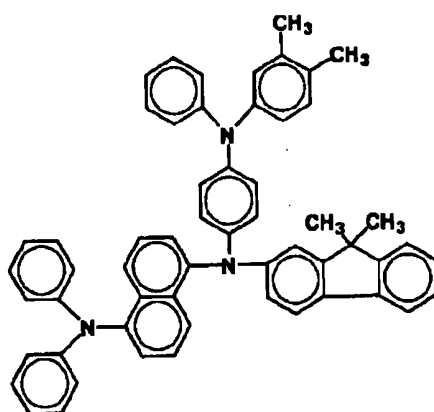
C-3



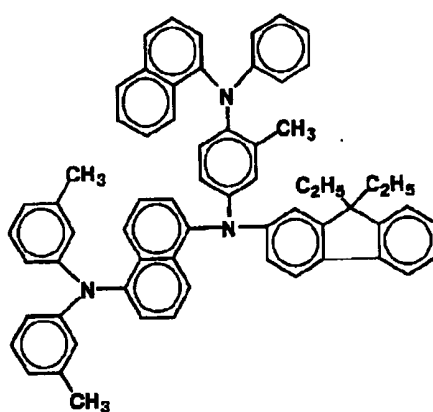
【0044】

【化21】

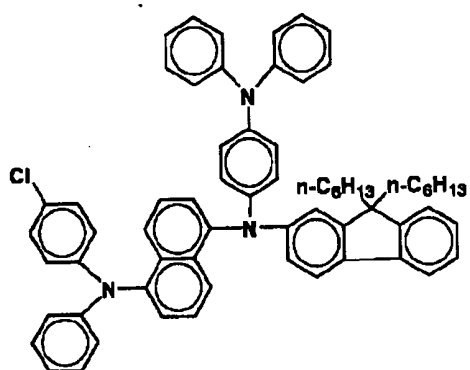
C-4



C-5



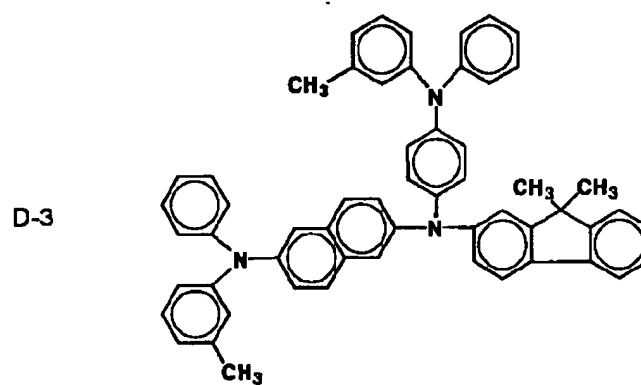
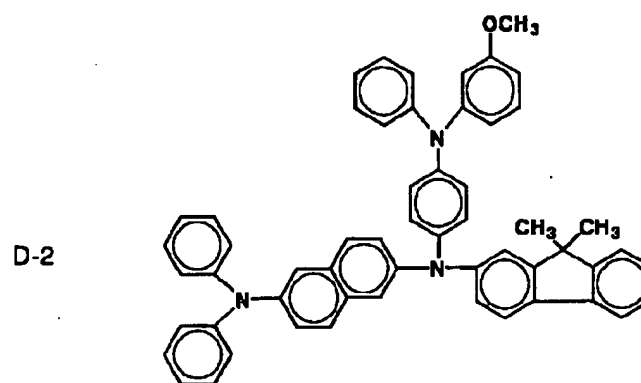
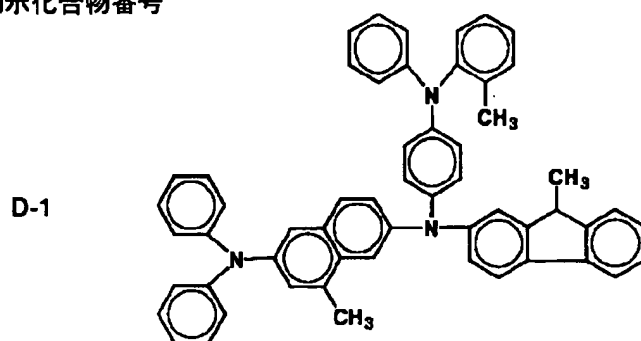
C-6



【0045】

【化22】

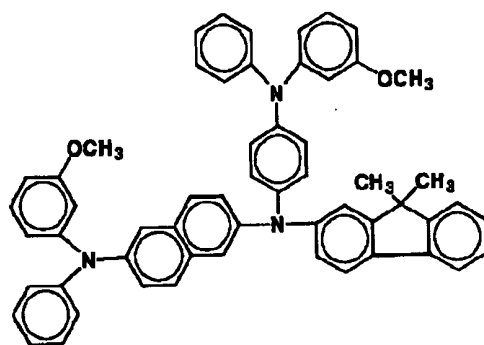
## 例示化合物番号



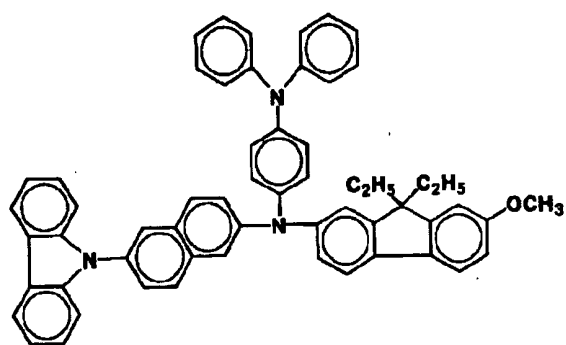
【0046】

【化23】

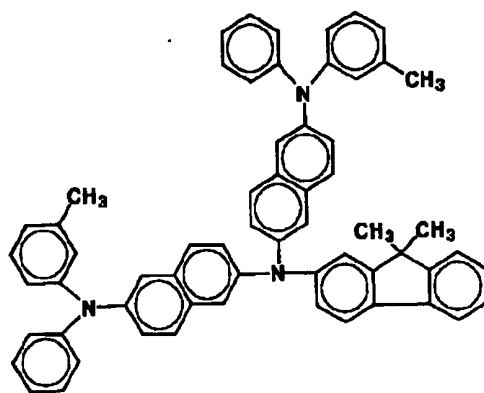
D-4



D5



D-6

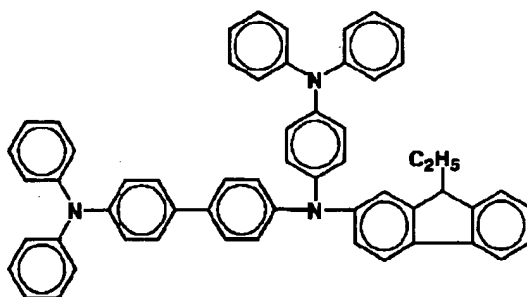


【0047】

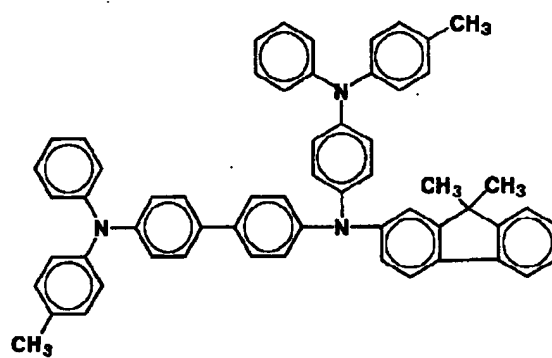
【化24】

## 例示化合物番号

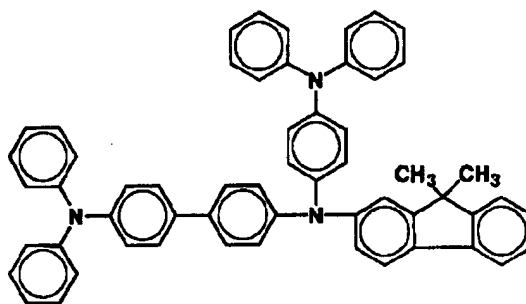
E-1



E-2

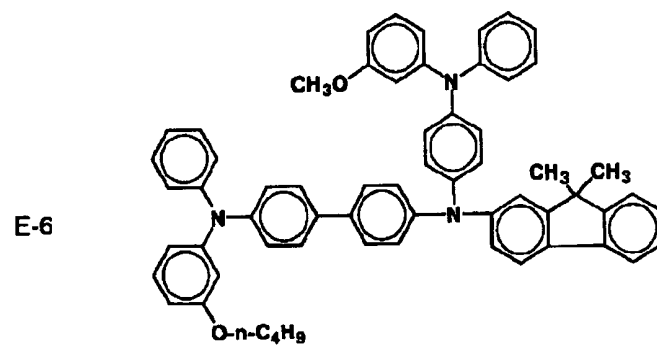
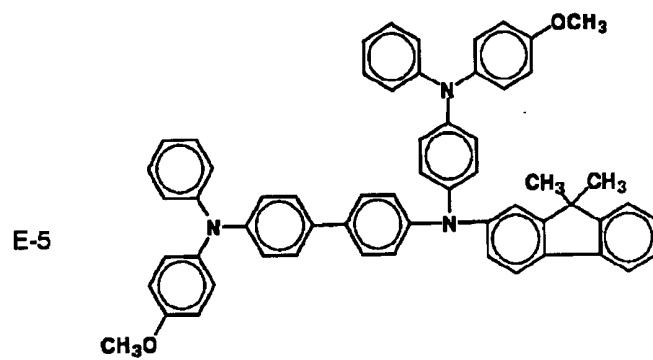
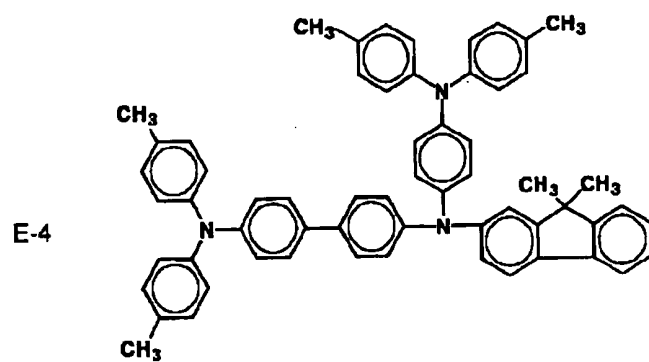


E-3



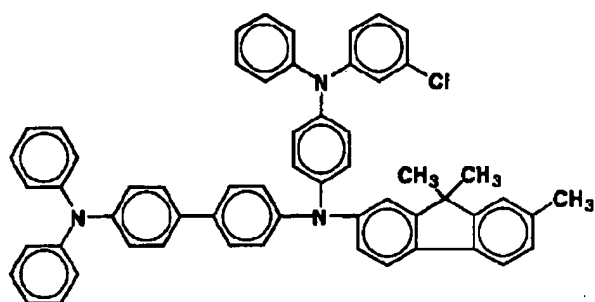
【0048】

【化25】

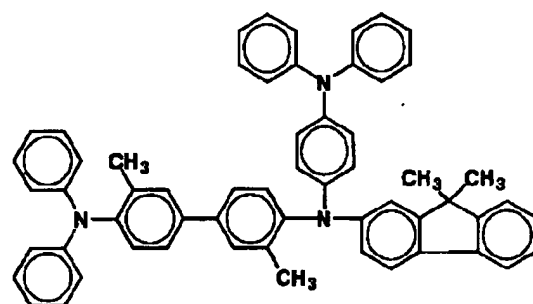




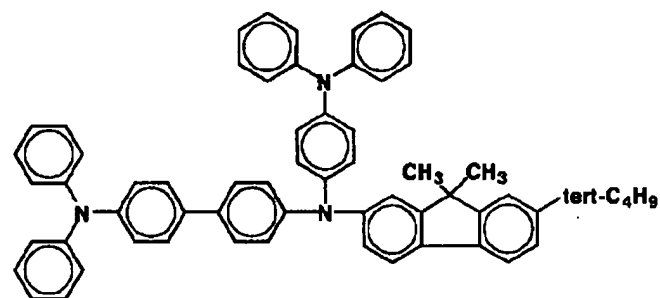
E-7



E-8



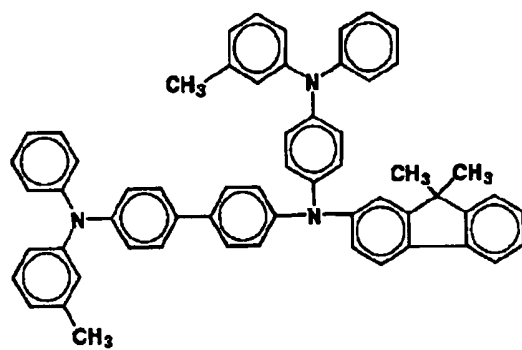
E-9



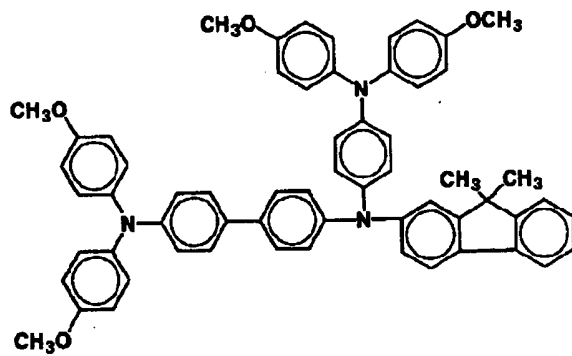
【0050】

【化27】

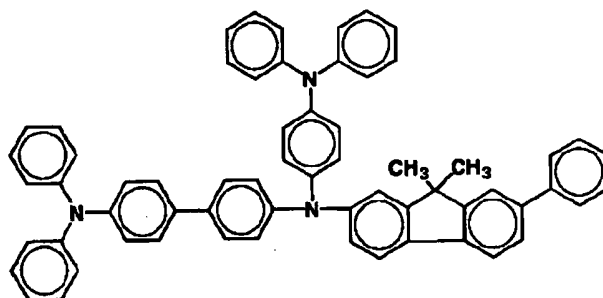
E-10



E-11



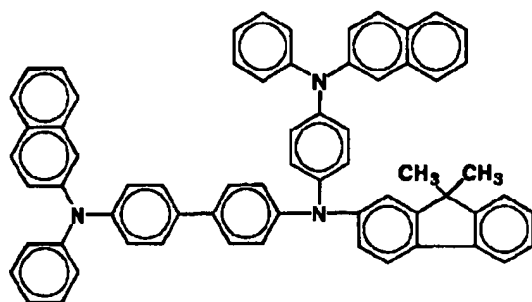
E-12



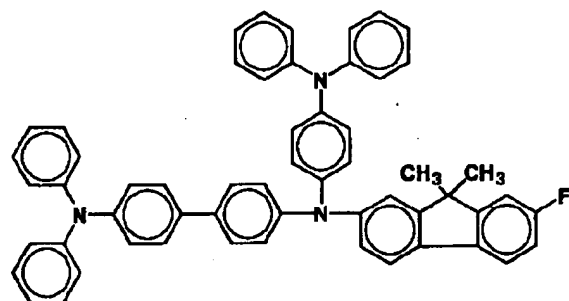
【0051】

【化28】

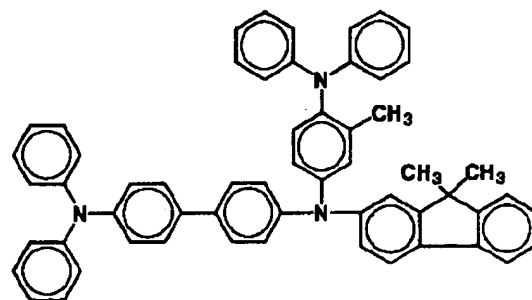
E-13



E-14



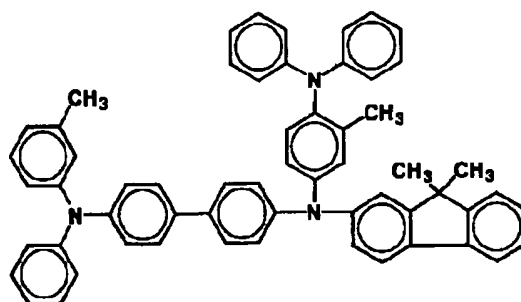
E-15



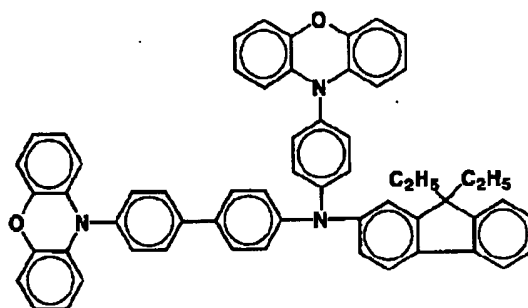
【0052】

【化29】

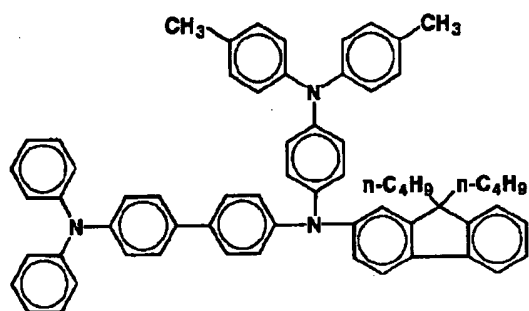
E-16



E-17

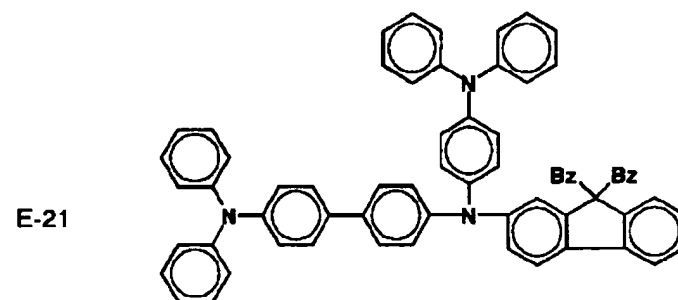
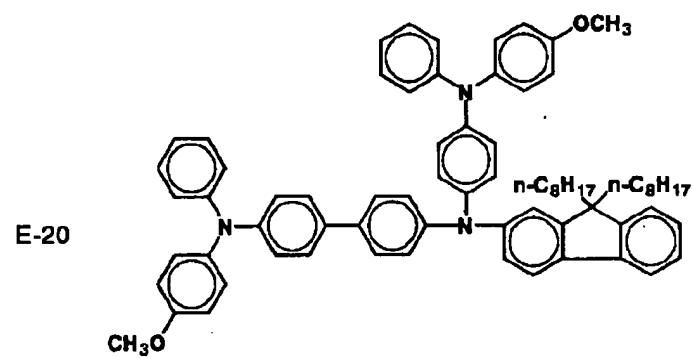
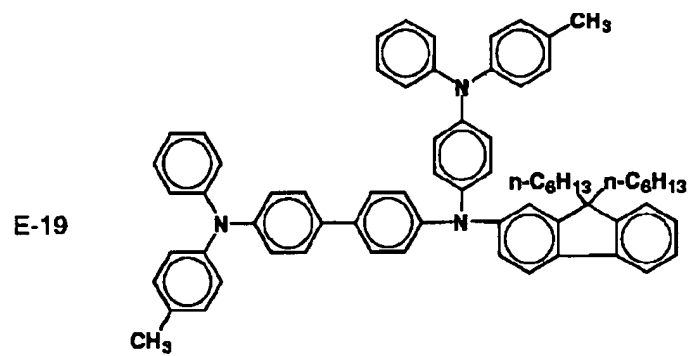


E-18



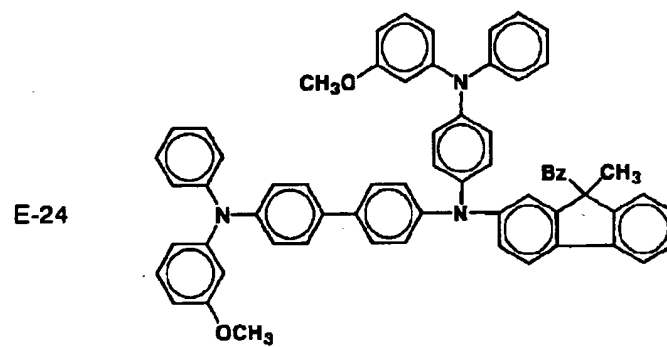
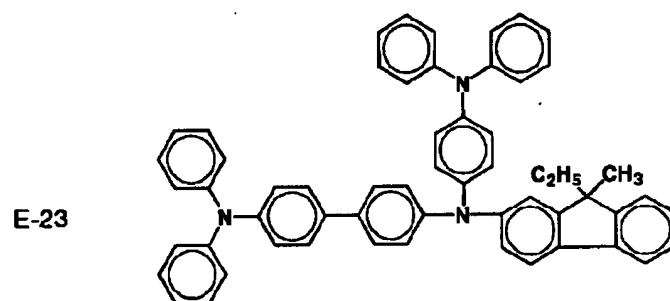
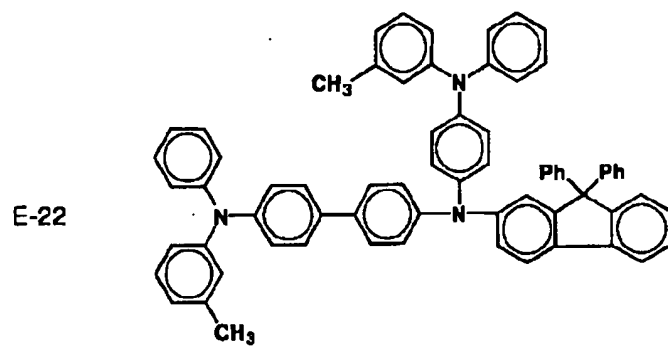
【0053】

【化30】



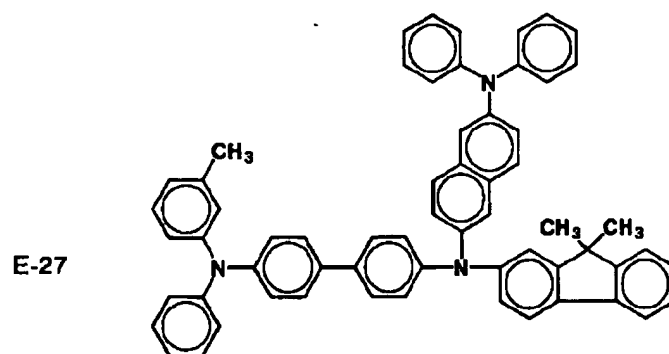
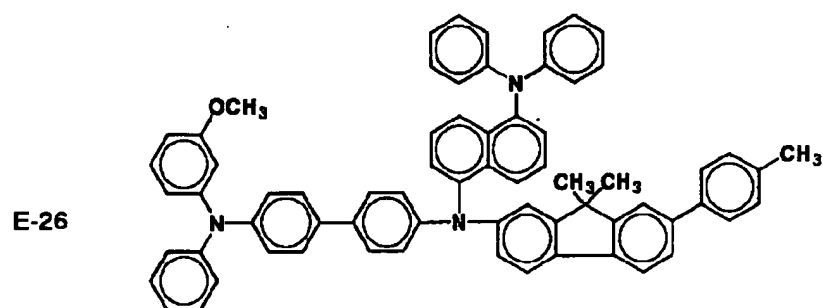
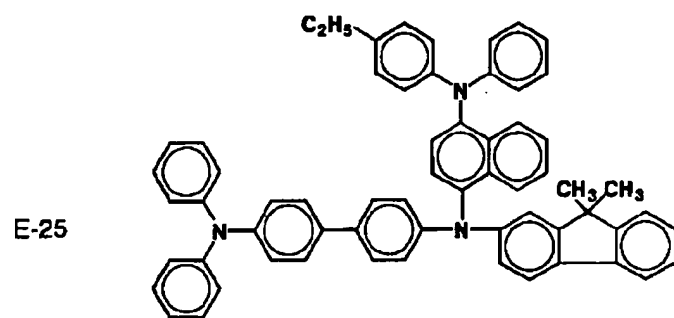
【0054】

【化31】



【0055】

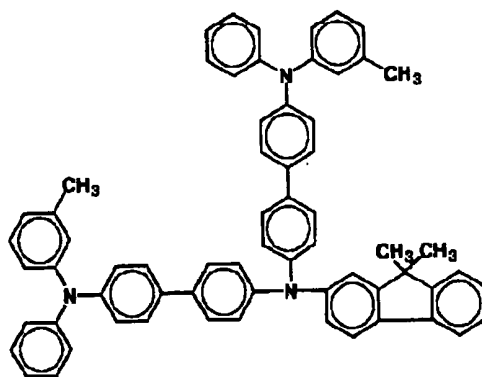
【化32】



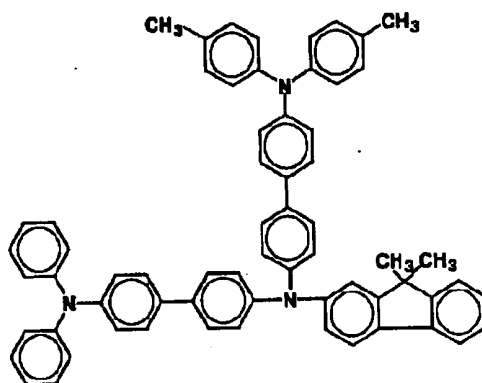
【0056】

【化33】

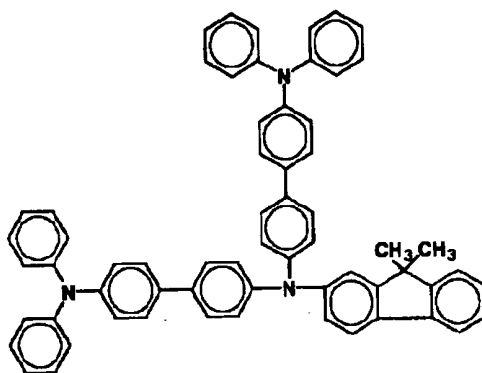
E-28



E-29



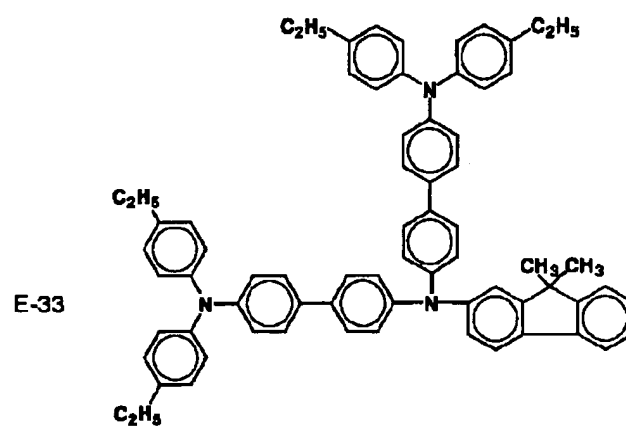
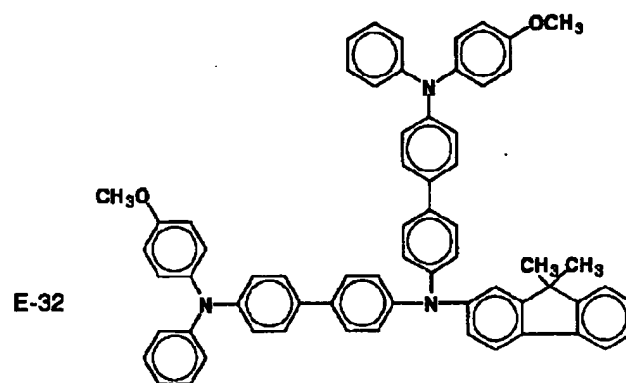
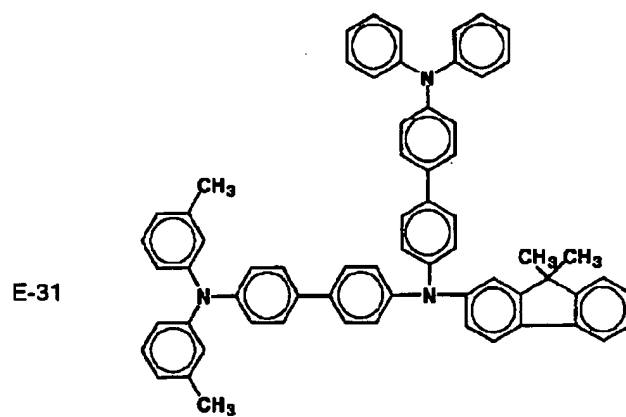
E-30



【0057】

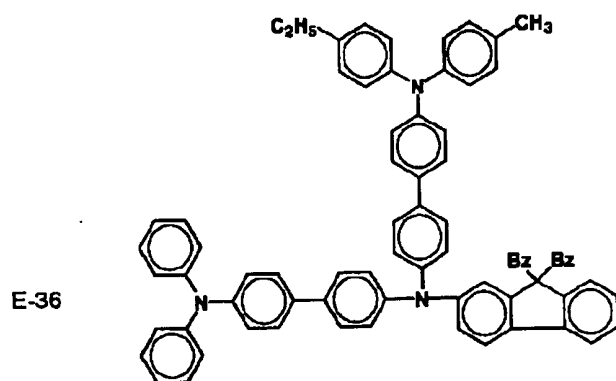
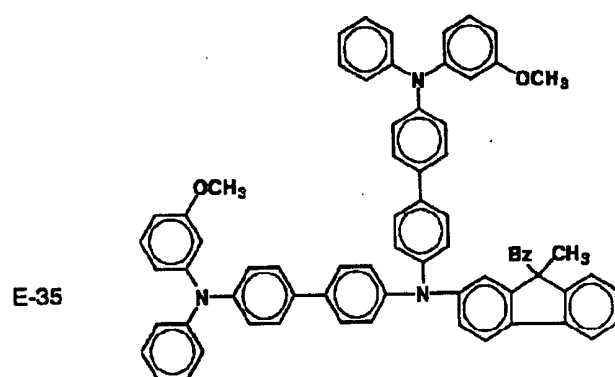
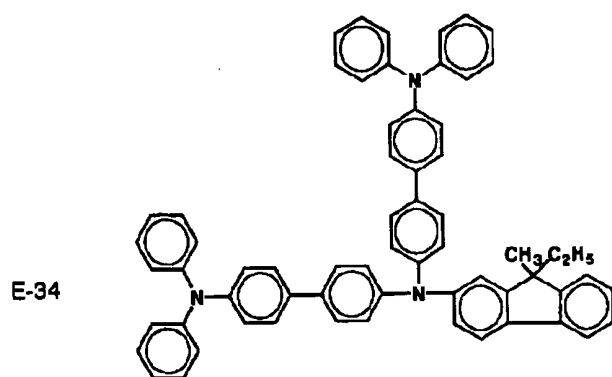
【化34】





【0058】

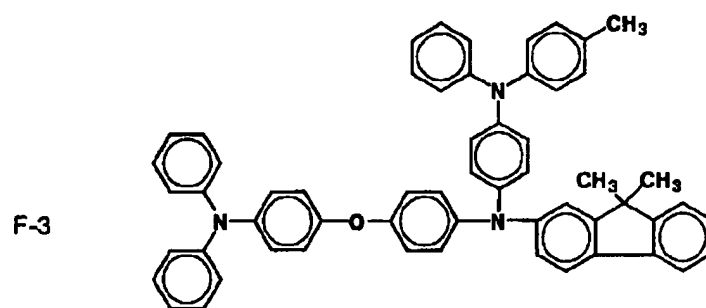
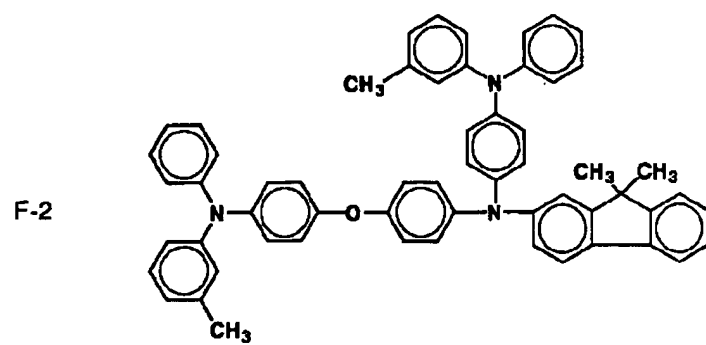
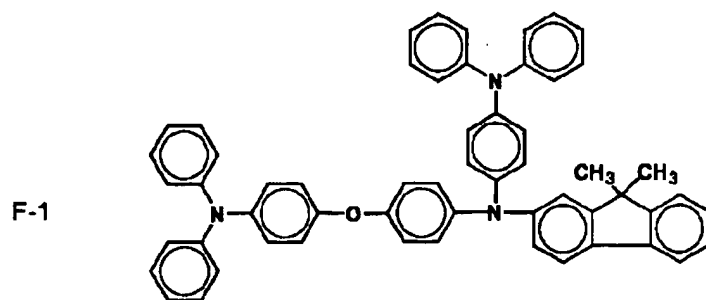
【化35】



【0059】

【化36】

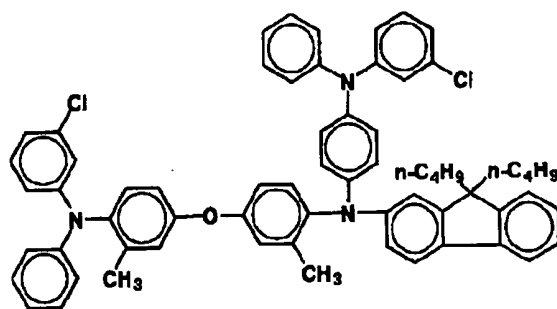
## 例示化合物番号



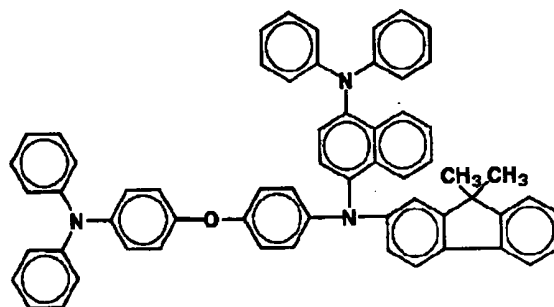
【0060】

【化37】

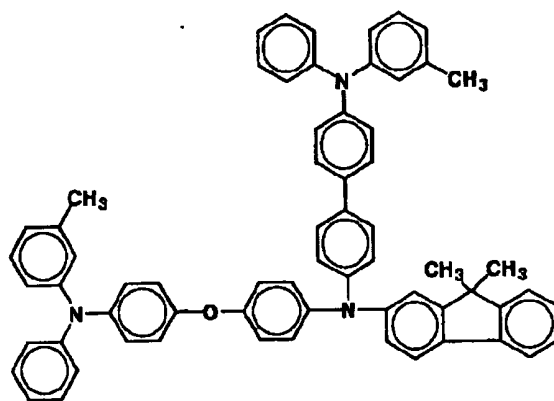
F-4



F-5

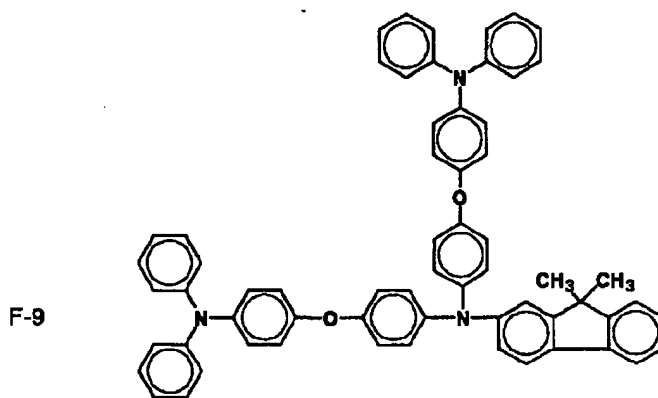
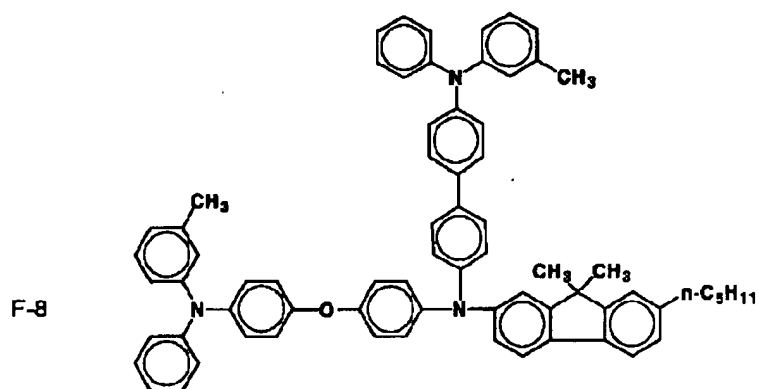
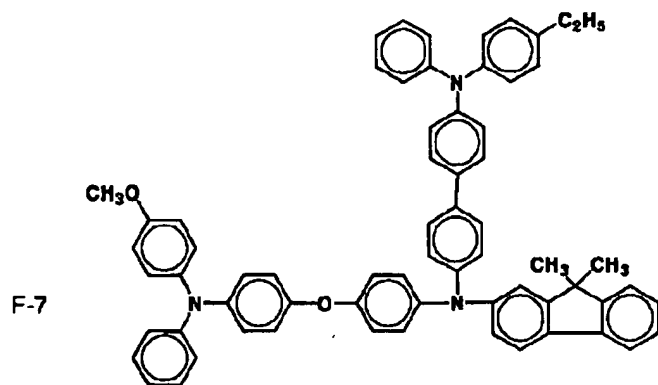


F-6



【0061】

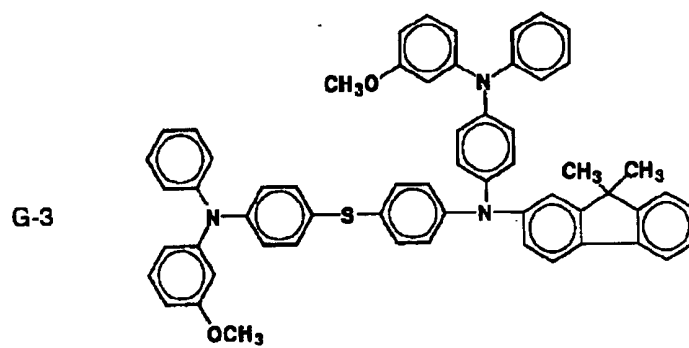
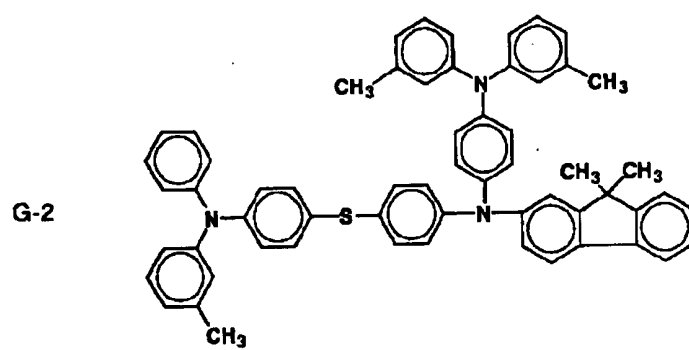
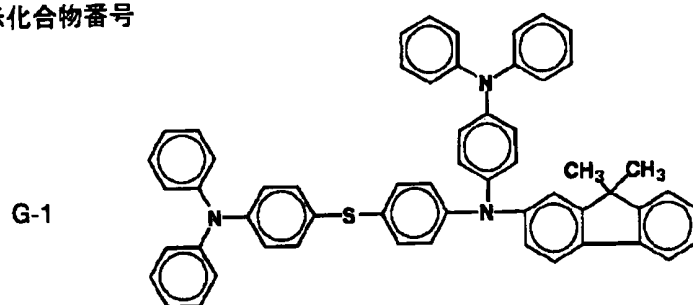
【化38】



【0062】

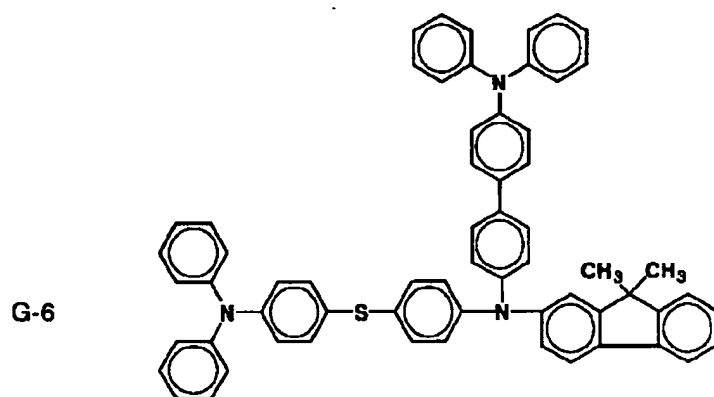
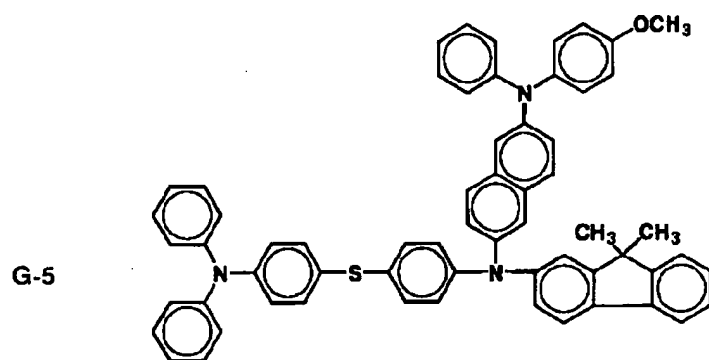
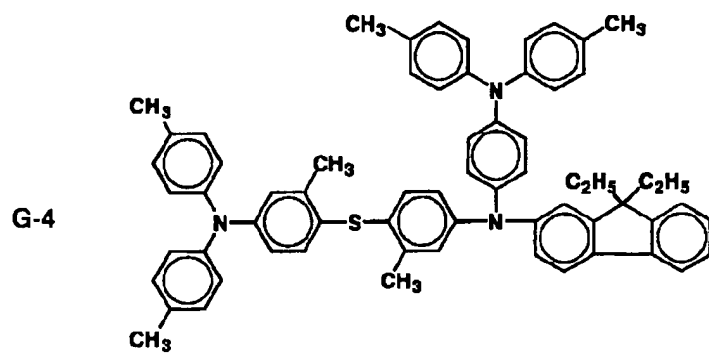
【化39】

## 例示化合物番号



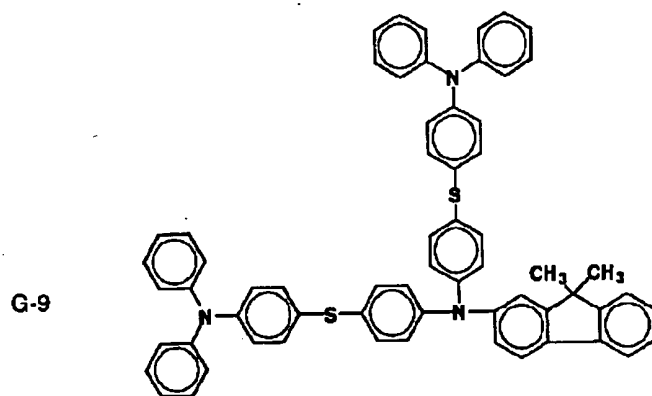
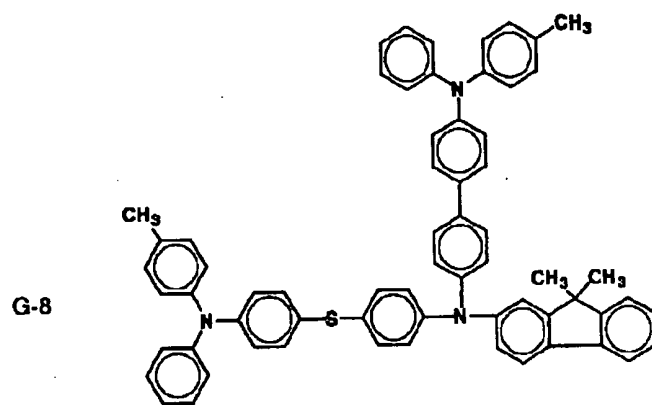
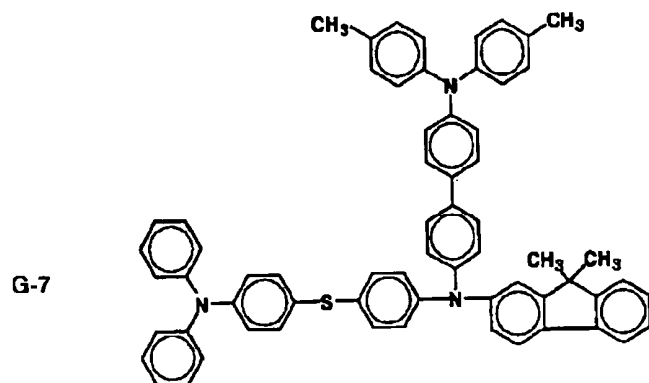
【0063】

【化40】



【0064】

【化41】

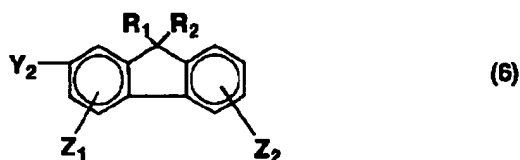
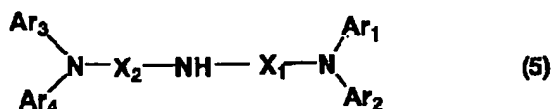
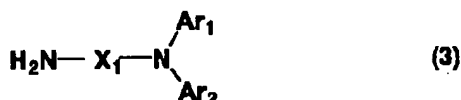


【0065】本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、其自体公知の方法により製造することができる。すなわち、例えば、一般式(3)(化42)で表される化合物と一般式(4)(化42)で表される化合物とより製造することができる一般式(5)(化42)で表される化合物と、一般式(6)(化42)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することができる。

【0066】

【化42】



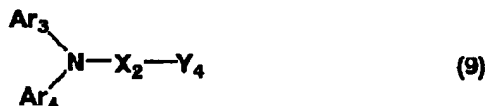
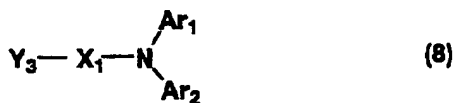
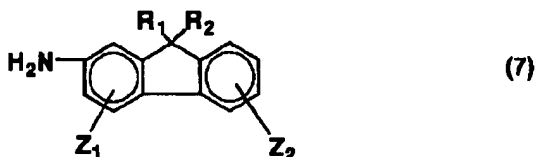


〔式中、Y<sub>1</sub>～Y<sub>2</sub> はハロゲン原子を表し、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>4</sub>、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>、X<sub>1</sub> およびX<sub>2</sub> は一般式(1)と同じ意味を表す〕

【0067】また、例えば、一般式(7)で表される化合物と、一般式(8)で表される化合物と一般式(9)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することもできる。

【0068】

【化43】



〔式中、Y<sub>3</sub>～Y<sub>4</sub> はハロゲン原子を表し、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>4</sub>、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>、X<sub>1</sub> およびX<sub>2</sub> は一般式(1)と同じ意味を表す〕

【0069】有機電界発光素子は、通常、一对の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸

送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子(一層型の素子)の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

【0070】本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表される化合物は、正孔注入輸送成分および/または発光成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分に用いることがより好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、一般式(1)で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0071】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。

(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0072】本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および/または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(E)型素子、(F)型素子または(G)型素子であり、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子または(G)型素子である。

【0073】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光

層/電子注入輸送層/陰極型素子について説明する。

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0074】本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

【0075】陽極2としては、比較的仕事関数の大きい金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO(インジウム・ティン・オキシド)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陽極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは、5~50 $\Omega/\square$ 程度に設定する。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

【0076】正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができる。尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。本発明の有機電界発光素子においては、正孔注入輸送層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。

【0077】本発明において用いる他の正孔注入輸送機

能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]ビフェニル、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、1,1'-ビス[4'-(N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ)フェニル]シクロヘキサン、9,10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N-ビス[4",4"-ビス[N',N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル-4-イル]アニリン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル]-2,2':5',2"-ターチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾール)トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス[N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン、1,3,5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1~99.9重量%程度、さらに好ましくは、1~99重量%程度、特に好ましくは、5~95重量%程度に調製する。

【0078】発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の発光機能を有する化合物(例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物(例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4,4'

ービス(9'-エチルアントラセニル)ビフェニル]、トリアリールアミン誘導体〔例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる〕、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔例えば、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル〕、クマリン誘導体〔例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体〔例えば、DCM1、DCM2〕、オキサゾン誘導体〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などを少なくとも1種用いて形成することができる。

【0079】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度に調製する。

【0080】本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、多環芳香族化合物、発光性有機金属錯体がより好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)とより構成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成することができ、さらにはゲスト化合物として発光層を形成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好ましい。この場合、一般式(1)で表される化合物に対し

て、他の発光機能を有する化合物を、0.001~40重量%程度、好ましくは、0.1~20重量%程度使用する。

【0081】一般式(1)で表される化合物と併用する多環芳香族化合物としては、特に限定するものではないが、例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9'-エチルアントラセニル)ビフェニルなどを挙げることができる。勿論、多環芳香族化合物は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

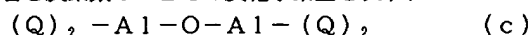
【0082】一般式(1)で表される化合物を、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。この場合、発光性有機金属錯体に対して、一般式(1)で表される化合物を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.1~20重量%程度使用する。一般式(1)で表される化合物と併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6~24の炭化水素基を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す)

【0083】発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)ア

ルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,5,6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、

【0084】ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウムなどを挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0085】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層に使用される電子注入輸送機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ベリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。尚、電子注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0086】陰極6としては、比較的工作関数の小さい金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下に設定するのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0087】また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げ

られ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層（例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層）の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層（例えば、正孔注入輸送層）を構成する全体量の0.01～50重量%、好ましくは、0.05～30重量%、より好ましくは、0.1～20重量%である。

【0088】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロゼット法など）により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 $10^{-5}$ Torr程度以下の真空下で、50～400℃程度のボート温度（蒸着源温度）、-50～300℃程度の基板温度で、0.005～50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0089】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用するバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0090】溶液塗布法により、各層を形成する場合、

各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキシド等の極性溶媒）および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

【0091】尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1～50重量%程度、好ましくは、1～30重量%程度の溶液濃度である。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5～99.9重量%程度、好ましくは、10～99重量%程度、より好ましくは、15～90重量%程度に設定する。

【0092】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5nm～5μm程度に設定することが好ましい。尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例

えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物)、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0093】また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜(例えば、酸化アルミニウム膜)、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層(中間層)を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0094】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印加電圧は、一般に、2~30V程度である。本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0095】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 実施例1

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号A-1の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、陰極として、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50℃、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.5V、輝度480cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は540時間であった。

【0096】実施例2~31

実施例1において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-1の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号A-2の化合物(実施例2)、例示化合物番号A-4の化合物(実施例3)、例示化合物番号A-6の化合物(実施例4)、例示化合物番号A-8の化合物(実施例5)、例示化合物番号A-10の化合物(実施例6)、例示化合物番号A-14の化合物(実施例7)、例示化合物番号A-17の化合物(実施例8)、例示化合物番号B-3の化合物(実施例9)、例示化合物番号B-4の化合物(実施例10)、例示化合物番号C-3の化合物(実施例11)、例示化合物番号D-3の化合物(実施例12)、例示化合物番号E-2の化合物(実施例13)、例示化合物番号E-3の化合物(実施例14)、例示化合物番号E-5の化合物(実施例15)、例示化合物番号E-10の化合物(実施例16)、例示化合物番号E-12の化合物(実施例17)、例示化合物番号E-13の化合物(実施例18)、例示化合物番号E-17の化合物(実施例19)、例示化合物番号E-21の化合物(実施例20)、例示化合物番号E-27の化合物(実施例21)、例示化合物番号E-28の化合物(実施例22)、例示化合物番号E-30の化合物(実施例23)、例示化合物番号E-33の化合物(実施例24)、例示化合物番号E-35の化合物(実施例25)、例示化合物番号F-3の化合物(実施例26)、例示化合物番号F-5の化合物(実施例27)、例示化合物番号F-6の化合物(実施例28)、例示化合物番号F-9の化合物(実施例29)、例示化合物番号G-1の化合物(実施例30)、例示化合物番号G-7の化合物(実施例31)を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1、2)に示した。

【0097】比較例1~2

実施例1において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-1の化合物を使用する代わりに、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル(比較例1)、9,9'-ジメチル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン(比較例2)を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表2)に示した。

【0098】

【表1】

第1表

有機電界 発光素子	初期特性 (50℃)		半減期 (50℃) (hr)
	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例2	470	6.7	520
実施例3	460	6.8	510
実施例4	460	6.6	520
実施例5	500	6.8	500
実施例6	490	6.7	520
実施例7	480	6.8	500
実施例8	460	6.4	540
実施例9	470	6.5	530
実施例10	450	6.5	520
実施例11	490	6.4	530
実施例12	500	6.6	520
実施例13	470	6.5	510
実施例14	460	6.4	520
実施例15	460	6.5	500
実施例16	480	6.4	530
実施例17	450	6.4	520
実施例18	460	6.5	500
実施例19	470	6.4	530

【0099】

【表2】

第1表 (続き)

有機電界 発光素子	初期特性 (50℃)		半減期 (50℃) (hr)
	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例20	460	6.7	520
実施例21	450	6.8	510
実施例22	480	6.6	520
実施例23	460	6.8	500
実施例24	510	6.7	520
実施例25	490	6.8	500
実施例26	460	6.4	540
実施例27	470	6.5	530
実施例28	470	6.5	510
実施例29	460	6.4	520
実施例30	460	6.5	500
実施例31	480	6.4	530
比較例1	300	6.6	5
比較例2	450	6.5	100

【0100】実施例32  
厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラ

ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ

らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2, 5-ジイル)を蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で、 $20 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号A-18の化合物を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $55 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第二正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.4 \text{ V}$ 、輝度 $480 \text{ cd/m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は $1200$ 時間であった。

#### 【0101】実施例33

厚さ $200 \text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、 $4, 4', 4''$ -トリス[N-(3''-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で、 $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号E-4の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $20 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2 \text{ V}$ 、輝度 $470 \text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1300$ 時間であった。

#### 【0102】実施例34

厚さ $200 \text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。ま

ず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2, 5-ジイル)を蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で、 $20 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。次いで、例示化合物番号E-22の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $55 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。減圧状態を保ったまま、次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。減圧状態を保ったまま、さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2 \text{ V}$ 、輝度 $480 \text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1500$ 時間であった。

#### 【0103】実施例35

厚さ $200 \text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号E-29の化合物を蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で、 $20 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号A-13の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $55 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらに、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.1 \text{ V}$ 、輝度 $520 \text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1600$ 時間であった。

#### 【0104】実施例36

厚さ $200 \text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号E-32の化合物を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $55 \text{ nm}$ の厚さに



蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号E-11の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで40nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、発光層とした。さらに、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで30nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2V、輝度560cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1500時間であった。

#### 【0105】実施例37

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート(重量平均分子量50000)、と例示化合物番号E-20の化合物を、重量比100:50の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、40nmの正孔注入輸送層とした。次に、この正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、10Vの直流電圧を印加したところ、95mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度980cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は250時間であった。

#### 【0106】実施例38

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ

らにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリメチルメタクリレート(重量平均分子量25000)、例示化合物番号E-34の化合物、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、それぞれ重量比100:50:0.5の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、100nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、80mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度530cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は300時間であった。

#### 【0107】

【発明の効果】本発明により、発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図2】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図3】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図4】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図5】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図6】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

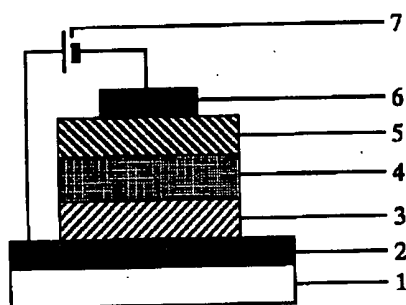
【図7】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図8】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

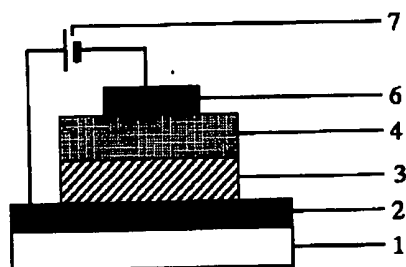
#### 【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入輸送層
- 3a 正孔注入輸送成分
- 4 発光層
- 4a 発光成分
- 5 電子注入輸送層
- 5" 電子注入輸送層
- 5a 電子注入輸送成分
- 6 陰極
- 7 電源

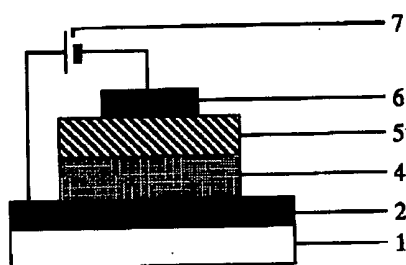
【図1】



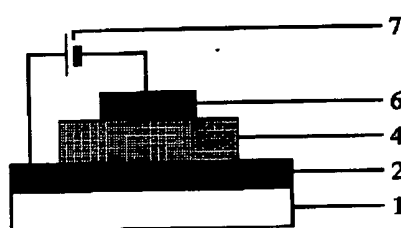
【図2】



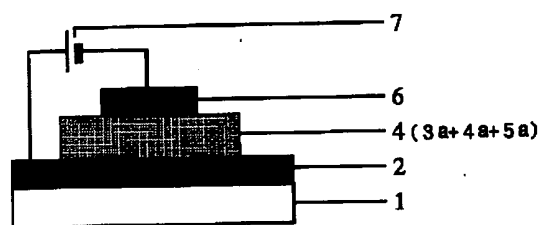
【図3】



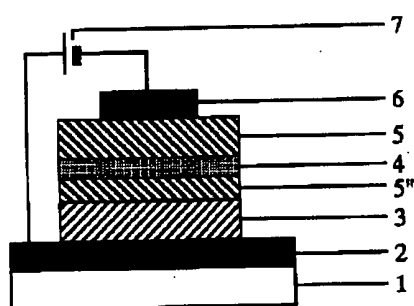
【図4】



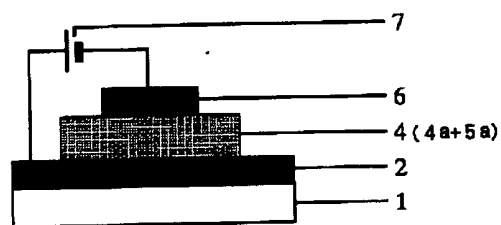
【図6】



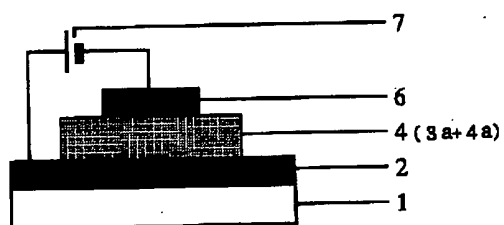
【図5】



【図8】



【図7】



## 【手続補正書】

【提出日】平成10年2月5日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

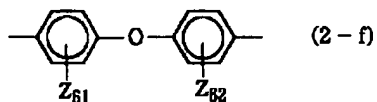
【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

【補正内容】

【0028】

【化9】



(式中、 $Z_{61}$ および $Z_{62}$ は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

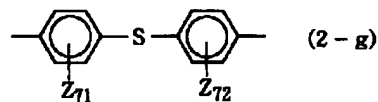
【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正内容】

【0029】

【化10】



(式中、 $Z_{71}$ および $Z_{72}$ は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

---

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

H05B 33/14

識別記号

FI

H05B 33/14

B

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**